# This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

### **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

### IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

## THIS PAGE BLANK (USPTO)

® BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND

# <sup>®</sup> Offenlegungsschrift

(I) DE 3331989 A1

(f) Int. Cl. 3: F23 N 1/02

A 62 D 3/00



DEUTSCHES PATENTAMT

(21) Aktenzeichen:

P 33 31 989.8

② Anmeldetag:

5. 9.83

Offenlegungstag:

4. 4.85

(1) AZ. 2006

<sup>22278</sup> U.S. PTO 09856342

7 Anmelder:

íλ

L. & C. Steinmüller GmbH, 5270 Gummersbach, DE

(72) Erfinder:

Leikert, Klaus, Dipl.-Ing.; Büttner, Gerhard, 5270 Gummersbach, DE; Rennert, Klaus-Dieter, Dipl.-Ing., 5277 Marienheide, DE



#### Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

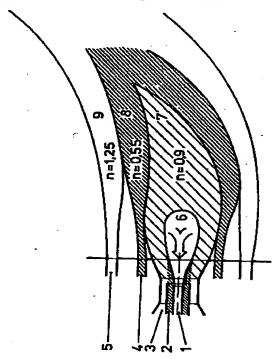
(5) Verfahren zur Verminderung der NO<sub>x</sub>-Emission bei der Verbrennung von stickstoffhaltigen Brennstoffen

Verfahren zur Verminderung der NO<sub>X</sub>-Emission bei der Verbrennung von stickstoffhaltigen Brennstoffen über Brenner in einem geschlossenen Feuerraum, bei dem Brennstoff und Verbrennungsluft der Brennerflamme in Teilströmen über voneinander getrennte Zuführungen gestuft zugegeben werden, wobei

 a) in einer ersten Stufe eine Primärflamme mit niedriger bis leicht unterstöchiometrischer Batriebsweise mit mindestens der Hälfte der Gesamtleistung erzeugt wird;

 b) in einer zweiten Stufe der Primärflamme atromab in einem gewissen Abstand Stufenbrennstoff mit einem Fluid zugeführt und eine Verbrennung mit dem Restsauerstoff aus der Primärflamme bzw. dem Sauerstoff des Fluids eingeleitet wird;

) in einer dritten Stufe (Ausbrandzone) das so entstandene Gemisch aus Rauchgas und nicht ausgebranntem Brennstoff mit einem starken Strahl weiterer Stufenluft erneut durchmischt und verbrannt wird.



3331989

Strategies and the second

#### Patentanspruch

والمراجع والم والمراجع والمراجع والمراجع والمراجع والمراجع والمراجع والمراج

Verfahren zur Verminderung der NOx-Emission bei der Verbrennung von stickstoffhaltigen Brennstoffen über Brenner in einem geschlossenen Feuerraum, bei dem Brennstoff und Verbrennungsluft der Brennerflamme in Teilströmen über voneinander getrennte Zuführungen gestuft zugegeben werden, gekennzeichne ich net durch folgende Verfahrensführung:

a) In einer ersten Stufe wird eine Primärflamme mit niedriger bis leicht unterstöchiometrischer Betriebsweise mit mindestens der Hälfte der Gesamtleistung erzeugt;

Contract to the second

网络克尔特人名英格兰人名英格兰 化二烷基酚 电流 医腹腔炎

- b) in einer zweiten Stufe wird der Primärflamme stromab in einem gewissen Abstand Stufenbrennstoff mit einem Fluid zugeführt und eine Verbrennung mit dem Restsauerstoff aus der Primärflamme bzw. dem Sauerstoff des Fluids eingeleitet;
- c) in einer dritten Stufe (Ausbrandzone) wird das so entstandene Gemisch aus Rauchgas und nicht ausgebranntem Brennstoff mit einem starken Strahl weiterer Stufenluft erneut durchmischt und verbrannt.

Common Administration of the Common Street, the Market

REPORT OF A CONTROL OF THE SECOND STORY OF THE SECOND SECO

State of the control of the control

- die Bildung von Brennstoff-NO<sub>X</sub>, die über die Oxidation im Brennstoff gebundener Stickstoffverbindungen erfolgt. Während der Pyrolyse eines flüssigen oder staubförmigen Brennstoffes bilden sich aus diesen Stickstoffverbindungen Stickstoff-Kohlenstoff- und Stickstoff-Wasserstoffradikale, z. B. HCN, die wegen ihrer Reaktionsfähigkeit mit molekularem Sauerstoff schon bei relativ niedrigen Temperaturen, bei der Anwesenheit von Sauerstoff, zu NO<sub>X</sub> oxidiert.

Eine Verringerung der thermischen NO<sub>X</sub>-Bildung erreicht man daher vor allem durch Absenken der Verbrennungstemperatur und der Verweilzeiten bei hohen Temperaturen. Da bei der Verbrennung von flüssigen und staubförmigen Brennstoffen mit gebundenem Stickstoff jedoch ein großer Anteil der gesamten NOx-Bildung über die Brennstoff-NO<sub>Y</sub>-Reaktion entsteht, sind bei solchen Brennstoffen vorgenannte Maßnahmen zur Erreichung der in einigen Ländern bestehenden Emissionsrichtwerte nicht ausreichend. Hierfür ist es notwendig, die Stickstoffverbindungen noch während der Pyrolyse in Abwesenheit von Sauerstoff zu molekularem Stickstoff (N2) zu reduzieren. Untersuchungen haben gezeigt, daß diese Reduktionsreaktionen zu molekularem Stickstoff z. B. dann stattfinden, wenn die Brennstoffe unter unterstöchiometrischen Bedingungen, d. h. mit weniger Sauerstoff- bzw. Luftzugabe als zur vollständigen Verbrennung nötig, verbrannt werden.

Bei praktischer Anwendung der oben näher beschriebenen Verfahrensführung hat sich gezeigt, daß mit einer solchen Teilverbrennung mit anschließender Nachverbrennung (Zweistufenverbrennung) sowohl die Brennstoff-NOx-Bildung bei gleichzeitigem Wärmeentzug aus dem unterstöchiometrischen Ber ich, aber auch die thermische NOx-Bildung vermindert werden konnte, wobei allerdings das ang strebte

2 -

人名英格兰 医激素质性病的 网络美格克森 "鲁二二",一个大小女子

L. + C. St inmüller GmbH 5270 Gummersbach, den 18.08.1983

Postfach 10 08 55/10 08 65

Pa 8317

Kl./Al.

THE SHOP IN A STORE OF THE STATE OF THE STAT

Patentanmeldung

the contract of the

THE CONTRACTOR OF THE PARTY OF

医高温性性 医乳腺 医乳腺性病 化二氯甲基二氯甲基二氯甲基

医囊体性病 医囊性畸形 医毛皮皮结束 克拉克

NOX-Emisssion bei der Verbrennung von stickstoffhaltigen Brennstoffen

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Verminderung der NOx-Emission bei der Verbrennung von stickstoffhaltigen Brennstoffen über Brenner in einem geschlossenen Feuerraum, bei dem Brennstoff und Verbrennungsluft der Brennerflamme in Teilströmen über voneinander getrennte Zuführungen gestuft zugegeben werden.

Die Reaktionsmechanismen, die die Bildung von Stickoxiden in technischen Peuerungen verursachen, sind weitgehend bekannt. Man unterscheidet heute im wesentlichen zwei verschiedene Bildungsreaktionen:

die thermische NO<sub>X</sub>-Bildung, die auf der Oxidation von molekularem Stickstoff beruht, der z.B. reichlich in der Verbrennungsluft vorkommt. Da die Oxidation von molekularem Stickstoff atomaren Sauerstoff oder aggressive Radikale (z.B. OH etc.) erfordert, ist sie stark temperaturabhängig, daher thermisches NO<sub>X</sub>;

4.

Ziel einer Verminderung von mehr als 50 % gegenüber einer ungestuften Verfahrensführung nicht err icht werden konnte.

Ein gattungsgemäßes Verfahren ist aus der US-PS 40 23 921 bekannt. Bei diesem Verfahren wird zur  $NO_X$ -Reduktion eine Rezirkulation von kaltem Rauchgas verwendet. Zwar wird auch eine gewisse Stufung der Verbrennung dadurch erreicht, daß die Verbrennungsluft in einen Primärstrom und einen Sekundärstrom aufgeteilt wird, die der Flamme auch hintereinander zugemischt werden, der Primärstrom beträgt jedoch nur 2% bis 10%. Diese geringe prozentuale Luftzumischung reicht aber nicht aus, um in der Primärzone einen wesentlichen Anteil des Brennstoffes zu pyrolysieren. Nur wenn in der Primärzone eine Brennstoffpyrolyse bei Sauerstoffmangel erreicht wird, kann die Bildung von  $Brennstoff-NO_X$  unterdrückt werden. Daher ist mit diesem Verfahren nur eine Verringerung des thermischen  $NO_X$  erreichbar. 

Man hat weiterhin festgestellt, daß durch Verlangsamung der Mischung zwischen Luft- und Brennstoffstrom ebenfalls beträchtliche Verminderung der NO<sub>X</sub>-Emission erreicht werden kann.

In einem bekanntgewordenen Kohlenstaubbrenner (DE-GM 18 68 003) wird der mantelförmige Sekundärluftstrom in zwei direkt benachbarten, ringförmig angeordneten, getrennt steuerbaren Rohren zugegeben, um z. B. den inneren und damit dem Staubstrahl unmittelbar benachbarten Sekundärluftstrom mit niedriger und den äußeren Sekundärluftstrom mit niedriger und den äußeren Sekundärluftstrom mit höherer Geschwindigkeit austreten zu lassen. Nachteilig an dieser Anordnung ist, daß eine Verlängerung der Flamme eintritt, die dadurch größere Feu rräume zur Folge hat, und daß bei der lastbedingten Absenkung der Sekundärluft die Sekundärluftgeschwindig-

keit abgesenkt wird, wodurch sich dr Charakter und die Form der Flamme ändern. Unter Umständen kann hierb i die Zündung nachteilig beeinflußt werden.

Weiterhin ist bekannt, eine Primärverbrennung unter unterstöchiometrischen Verhältnissen in einer Vorkammer vorzunehmen und die zum vollständigen Ausbrand erforderliche Luft den Feuergasen, die die Vorkammer verlassen, zuzumischen. Weiterhin werden durch einen Brenneraufsatz Rauchgase aus dem Feuerraum angesaugt (DE-OS 21 29 357).

Der bisher bekannt gewordene Stand der Technik und die in Verbindung mit umfangreichen Versuchen gewonnenen Erkenntnisse haben gezeigt, daß die angestrebte NOx-Verminderung nicht erreicht werden konnte. Es sind daher, aufbauend auf den gewonnenen Erkenntnissen, weitere Versuche durchgeführt worden mit der Zielsetzung, zwangsläufig noch gebildetes NOx zu reduzieren, um insgesamt gesehen eine NOx-Verminderung auf angestrebter Höhe zu erreichen. Diese Versuche gehen im wesentlichen davon aus, daß den Rauchgasen aus einer ersten Flamme Zusatzbrennstoff zugemischt wird. Bei der Vermischung des Zusatzbrennstoffes mit den heißen  $NO_X$ -behafteten Rauchgasen entstehen Verbrennungsprodukte, die das bereits gebildete Stickoxid aus den Rauchgasen der Primärflamme reduzieren. Außerdem wird der gesamte Brenstoffstickstoff, der in den flüchtigen Bestandteilen des Zusatzbrennstoffes enthalten ist, zusammen mit diesen freigesetzt und unter den reduzierenden Bedingungen zu molekularem Stickstoff zurückgebildet.

Bereits gebildetes Stickoxid wird sowohl an den Kohlenstoffpartikeln der Sekundärflamme durch direkte Reaktion als auch an den gasförmigen Bestandteilen der Sekundärflamme (indirekte Reaktion) reduziert. stoffes in di aus der Primärflamme kommenden Rauchgase die sich ausbildende Sekundärverbrennungszone zwar den gewünschten NO<sub>X</sub>-reduzierenden Eff kt besitzt, jedoch infolge des Kontaktes der reduzierenden Atmosphäre mit den Umfassungswänden des Feuerraumes brennstoffbedingt Korrosionen und Verschlackungen auslöst.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, bei der Verbrennung von stickstoffhaltigen Brennstoffen über Brenner die Verfahrensführung derart zu wählen, daß die Einflußnahme über Sekundärbrennstoffe auf eine NOx-Reduzierung voll erhalten bleibt, ohne daß die reduzierenden Rauchgase mit den Umfassungswänden des Feuerraumes in Kontakt kommen und Korrosionen und Verschlackungen auslösen.

Zur Lösung dieser Aufgabe wird zur Verminderung der NOX-Emissionen von stickstoffhaltigen Brennstoffen über Brenner eine Verfahrensführung vorgeschlagen, die folgendermaßen gekennzeichnet ist:

- a) In einer ersten Stufe wird eine Primärflamme mit niedriger bis leicht unterstöchiometrischer Betriebsweise mit mindestens der Hälfte der Gesamtleistung erzeugt;
- b) in einer zweiten Stufe wird der Primärflamme stromab in einem gewissen Abstand Stufenbrennstoff mit einem Fluid zugeführt und eine Verbrennung mit dem Restsauerstoff aus der Primärflamme bzw. dem Sauerstoff des Fluids eingeleitet;
- c) in einer dritten Stufe (Ausbrandzone) wird das so entstandene Gemisch aus Rauchgas und nicht ausgebranntem Brennstoff mit einem starken Strahl weiterer Stufenluft ern ut durchmischt und verbrannt.

Normalerweise ist die direkte Reaktion vorherrschend. Hauptsächlich geht es dabei um eine Reduktion von Stickstoffmonoxid mit gebundenen Kohlenstoffatomen. Das Kohlenmonoxid-Verhältnis wird von der Temperatur und von der Natur des Feststoffpartikels bestimmt. Während dieser Reaktion bilden sich gleichfalls Kohlenstoff-Sauerstoff-Komplexe an der Oberfläche des Feststoffteilchen, die, wenigstens bei niedrigen Temperaturen, den globalen Reduktionsvorgang beeinträchtigen. Die Anwesenheit von Wasserstoff oder Kohlenmonoxid als gasförmige Reduziermittel beschleunigt daher den Reaktionsvorgang, weil sie unter Bildung von Kohlendioxid und Wasser mit diesen Oberflächenkomplexen reagieren.

Sobald aber im Reaktionsgebiet eine Wasserstoffquelle auftritt (sei es Wasserstoff oder feststoffgebundene Wasserstoffatome), stellt sich die indirekte Umwandlung parallel zur direkten ein. Speziell in Anwesenheit freier Wasserstoffmoleküle werden beträchtliche Mengen von Ammoniak als Stickstoffzwischenprodukte gebildet. Letztere verwaneln sich weiter auch in Stickstoff, und zwar auf direktem Weg (durch Reagieren mit Stickstoffmonoxid oder mit Ammoniak) und auch auf indirektem Wege über die Bildung von Blausäure als Zwischenprodukt.

Die Bedeutung solcher heterogener Stickstoffmonoxidreduzierung unter typischen Flammenbedingungen ist bis
jetzt noch nicht eindeutig geklärt. Dennoch gibt es
wichtige Hinweise, daß wenigstens im Falle von Steinkohlenstaub-Flammen, dieser Vorgang in der Bestimmung der
Stickstoffmonoxidemissionen eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielt. Diese theoretischen und versuchstechnisch gestützten Überlegungen sind in Verbindung mit
der angewendeten Versuchstechnik großtechnisch auf die
dort eingesetzten Brennerkonzeptionen nicht ohne weiteres anwendbar, weil bei einer Zugabe des Sekundärbrenn-

Während in der ersten Stufe zur Schaffung einer Primärflamme di bekannten Verfahrenskriterien angewendet werden, erfolgt in der zweiten Stufe durch die Zugabe von Sekundärbrennstoff um den Flammenkegel herum die vom Sekundärbrennstoff ausgehende NOx-reduzierende Wirkung. Um die insbesondere durch die Verfahrensführung in der zweiten Stufe erzielten Wirkungen voll erhalten zu können und Korrosions- und Verschlackungserscheinungen zu vermeiden, wird in einer dritten Stufe weitere Verbrennungsluft so zugegeben, daß der Restausbrand der Rauchgase sichergestellt ist und die Flamme mit den Feuerraumumfassungswänden nicht in unmittelbare Berührung kommt.

1

Anhand der in der Zeichnung dargestellten Figur ist das erfindungsgemäße Verfahren im Prinzip an einem Ausführungsbeispiel nachfolgend erläutert.

The state of the s

Primärbrennstoff wird mit seiner Tragluft durch den Querschnitt 2 des Primärbrenners eingedüst. Mantelluft wird mit einem Drall versehen in einem koaxial dazu angeordneten äußeren Querschnitt 3 zugegeben. Diese Brennstoffund Luftzugabe bilden eine Primärflamme 7, die unteroder nahstöchiometrisch betrieben wird. Die sich ausbildende Primärflamme 7 besitzt eine hohe Zündstabilität infolge der Anlehnung an die Luft- und Brennstoffzuführung des Wirbelbrenners, bei dem die Zündung durch das Vorhandensein einer starken internen Rückstromzone 6 unabhängig von den benachbarten Brennern erzwungen wird. Dieser Brennerflamme wird Zusatzbrennstoff über Düsen 4, die am Umfang des Primärbrenners angeordnet sind, so zugegeben, so daß sich stromab ein sogenannter Sekundärflammenbereich 8 ausbildet, der stark unterstöchiometrisch ist und in der das aus dem Primärflammenbereich entstandene NO<sub>X</sub> reduziert wird. Dem sogenannten Sekundärflammenbereich 8 wird weiterhin über Düsen 5 weitere

Verbrennungsluft zugegeben, deren Aufgabe es ist, den Restausbrand in einer Zone 9 sicherzustellen und eine geschlossene Flammenform zu erzeugen, bei der die Berührung der Flamme mit den Feuerraumwänden vermieden ist. Die Zugabe der weiteren Verbrennungsluft (3. Stufe) kann ein- oder mehrstrahlig erfolgen.

- 10 -- Leerseite en de la composition La composition de la

11.

Nummer: Int. Cl.<sup>3</sup>: Anmeldetag: Offenlegungstag: **33 31 989 F 23 N 1/02**5. September 1983
4. April 1985